

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

(11) N° de publication :

(A n'utiliser que pour les
commandes de reproduction).

2 350 353

A1

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

(21)

N° 77 13759

(54) **Nitrilo (triméthylphosphonates) de bis (haloalkyle) utilisés comme produits de retardement d'inflammation ou d'incendie et compositions de polyuréthane les renfermant.**

(51) Classification internationale (Int. Cl.²). **C 07 F 9/40; C 08 K 5/53; C 08 L 75/04 //
C 09 K 3/28.**

(22) Date de dépôt **5 mai 1977, à 15 h 54 mn.**

(33) (32) (31) Priorité revendiquée : ***Demande de brevet déposée aux Etats-Unis d'Amérique le
5 mai 1976, n. 683.357 au nom de James A. Albright.***

(41) Date de la mise à la disposition du public de la demande **B.O.P.I. — «Listes» n. 48 du 2-12-1977.**

(71) Déposant : **Société dite : VELSICOL CHEMICAL CORPORATION. Constituée selon les lois de l'Etat de Delaware, USA, résidant aux Etats-Unis d'Amérique.**

(72) Invention de :

(73) Titulaire : *Idem* (71)

(74) Mandataire : **Cabinet Chereau et Cabinet Rodes réunis, 107, boulevard Péreire, 75017 Paris.**

D

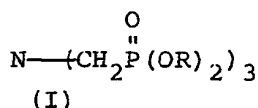
Vente des fascicules à l'IMPRIMERIE NATIONALE, 27, rue de la Convention — 75732 PARIS CEDEX 15

La présente invention se rapporte à des composés qui sont ces esters d'acide du phosphore, où ces composés contiennent au moins une liaison P-O-C, trois atomes de phosphore, et où au moins ceux des atomes de phosphore sont liés les uns aux autres par un radical contenant du carbone dans lequel chaque phosphore est directement fixé à au moins un atome de carbone. Les composés compris dans le domaine de protection de la présente invention sont également des produits de retardement d'inflammation pour des compositions polymères de polyuréthane.

Durant les dernières années passées, un grand nombre de produits de retardement d'inflammation ont été mis au point pour l'utilisation avec un nombre presque également grand de matières inflammables. Des matières cellulosiques (telles que le papier et le bois) et des matières polymères (telles que des polyoléfinés, du polyuréthane et du polystyrène) ne sont que deux exemples de matières pour lesquelles des produits de retardement d'inflammation ont été mis au point. Pour toute classe de matières inflammables, telles que des polymères du type synthétique, les personnes expérimentées dans la technique savent depuis longtemps que certains additifs de retardement d'inflammation sont plus efficaces dans des polymères et dans des compositions polymères que d'autres additifs de retardement d'inflammation. Il en est ainsi parce que l'efficacité de tout produit de retardement d'inflammation dans des polymères ou dans des compositions polymères est mesurée non seulement par l'aptitude au retardement d'inflammation de l'additif, mais aussi par l'aptitude de l'additif à améliorer ou à modifier, ou au moins à ne pas dégrader, d'autres propriétés physiques ou mécaniques du polymère ou de la composition polymère. En conséquence, le simple fait que la plupart des produits de retardement d'inflammation contiennent des atomes d'halogène et de phosphore n'assure pas que tout composé donné halogéné ou contenant du phosphore confèrera des caractéristiques utilisables de retardement d'inflammation à tous les systèmes polymères ou même à n'importe quel système polymère. En outre, comme les personnes expérimentées dans la technique ont amélioré l'aptitude au retardement d'inflammation de nombreuses matières polymères, elles ont simultanément exigé la prévision de l'aptitude nécessaire au retardement d'inflammation avec un effet minimum sur d'autres propriétés du polymère, telles que la stabilité

à la lumière, l'aptitude au traitement, et les résistances à la flexion, à la traction et aux chocs. Egalement, le désir des personnes impliquées dans la technique du retardement d'inflammation ou d'incendie a été de prévoir des produits de retardement d'inflammation ou d'incendie ayant un effet durable. L'équilibre de toutes les considérations précédentes et la mise au point de compositions polymères à bonnes caractéristiques de retardement d'inflammation, ainsi qu'un équilibre satisfaisant d'autres propriétés sont, en conséquence, une tâche qui, dans le passé, a exigé et qui continue actuellement d'exiger l'exercice d'un degré élevé d'habileté inventive.

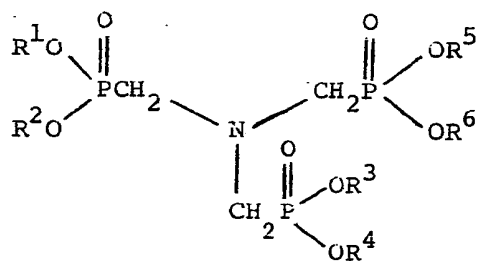
La présente invention se rapporte à des composés de formule :



où chaque R est indépendamment choisi dans le groupe comprenant des radicaux alkyles halogénés, ayant environ 2 à environ 6 atomes de carbone et 1 à environ 4 substituants halogénés. On comprend également dans le domaine de la présente invention une composition polymère de polyuréthane, comprenant un polymère de polyuréthane et une quantité, retardatrice d'inflammation, du composé décrit ci-dessus.

Les composés de retardement d'inflammation compris dans le domaine de la présente invention ont la formule (I) ci-dessus où chaque R est indépendamment choisi dans le groupe se composant de radicaux alkyles halogénés contenant environ 2 à environ 6 atomes de carbone, de préférence environ 2 à environ 4 atomes de carbone, et 1 à environ 4 substituants halogénés. De préférence, les substituants halogénés sont choisis dans le groupe comprenant le chlore et le brome. On préfère également que tous les groupes R soient identiques. Seulement dans des buts d'illustration, le tableau I est conçu pour aider encore à décrire les composés de la formule I selon la présente invention et n'est pas destiné à fournir une liste complète de tous les composés compris dans le domaine de la formule I.

TABLEAU I

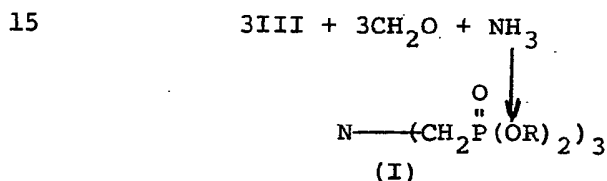
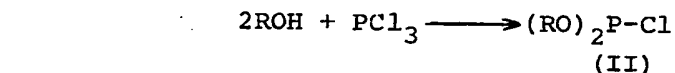


Composé

10	1	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHBrCH}_2\text{Br}$
	2	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHClCH}_2\text{Cl}$
15	3	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Br}$
	4	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Br}$
	5	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHBrCH}_3$
20	6	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Cl}$
	7	où R^1 à R^6 représentent chacun $(\text{CH}_2)_5\text{CH}_2\text{Br}$
	8	où R^1 à R^6 représentent chacun $(\text{CH}_2)(\text{CHBr})_3\text{CH}_2\text{Br}$
25	9	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_2\text{Br})_2$
	10	où R^1 est $\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Br}$ et R^2 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHBrCH}_2\text{Br}$
30	11	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHClCH}_2\text{Br}$
	12	où R^1 et R^2 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHBrCH}_2\text{Br}$ et R^3 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHClCH}_2\text{Cl}$
35	13	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}(\text{CH}_2\text{Br})_2$
	14	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}(\text{CH}_2\text{Cl})_2$
38	15	où R^1 à R^6 représentent chacun $\text{CH}_2\text{CHClCH}_2\text{CCl}_3$

On indique dans ce qui suit une liste partielle des composés préférés compris dans le domaine de la présente invention : le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dibromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dichloropropyle),
 5 le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-bromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-chloropropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-bromoéthyle) et le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-chloroéthyle).

Les composés compris dans le domaine de la présente invention sont préparés selon le schéma de réaction suivant :



où R est tel que défini ci-dessus. En général, deux moles d'un haloalcanol sont ajoutées goutte à goutte à du trichlorure de phosphore. Cette addition peut avoir lieu en présence ou en l'absence d'un solvant. Si un solvant est utilisé, on peut employer un solvant inerte, par exemple le toluène, le benzène, l'éther, etc... La
 25 réaction indiquée ci-dessus peut être réalisée entre environ 0°C et environ 35°C. De l'eau est ajoutée goutte à goutte au produit constitué de chlorophosphite de bis(haloalkyle) de la réaction indiquée ci-dessus, tout en maintenant la température des produits réagissants entre environ 0°C et environ 15°C. Le phosphite de bis
 30 (haloalkyle) est le produit de la dernière réaction. Ce produit est isolé en faisant évaporer le solvant et est utilisé sous sa forme brute dans l'étape suivante. L'étape suivante consiste à ajouter ce phosphite de bis(haloalkyle) à une solution contenant 3 moles de formaldéhyde (ou une quantité équivalente de paraformaldéhyde) et
 35 une mole d'ammoniac. Cette addition doit avoir lieu à une température d'environ 40°C à environ 100°C. Le produit final constitué du nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(haloalkyle) est lavé
 38 avec de l'eau et séché à une température d'environ 80 à environ 120°C jusqu'à ce qu'on obtienne un poids constant.

Les composés de la présente invention sont utiles comme produits de retardement d'inflammation dans des compositions polymères de polyuréthane, comprenant un polymère d'uréthane et une quantité, retardatrice d'inflammation, des composés décrits ci-dessus. Les polymères de polyuréthane comprennent non seulement les mousses rigides et flexibles mais les compositions élastomères solides. Une description plus détaillée des polymères de polyuréthane applicables à la présente invention peut être trouvée dans l'ouvrage Modern Plastics Encyclopedia, Vol. 52, N° 1CA, MacGraw-Hill, Inc., New York, New York (1975). On prévoit également que les produits de retardement d'inflammation de formule I posséderont une efficacité de retardement d'inflammation dans des compositions de polystyrène, de polyesters et époxydées, transformées en mousse.

Les produits de retardement d'inflammation compris dans le domaine de la présente invention peuvent être incorporés dans ou appliqués sur les polymères décrits ci-dessus par des techniques qui sont normalisées ou bien connues des personnes expérimentées dans la technique. On se référera, par exemple, à l'ouvrage de J. M. Lyons "The Chemistry and Use of Fire Retardants", Wiley Interscience, New York, 1970 et à l'ouvrage de Z. E. Jolles, "Bromine and Its Compounds", Academic Press, New York, 1966.

La quantité de produit de retardement d'inflammation qui est utilisée dans les compositions et dans les procédés de la présente invention est la quantité nécessaire pour produire une aptitude mesurable au retardement d'inflammation dans les compositions qui sont ainsi modifiées. Selon le composé particulier et le polymère particulier avec lequel elle est combinée, la quantité de produit de retardement d'inflammation employée dans les compositions et dans les procédés de la présente invention peut être toute quantité allant jusqu'à environ 35 % (ou plus) en poids par rapport à la composition totale. Pour la plupart des compositions, un produit de retardement d'inflammation formera environ 1 à environ 25 % en poids de la composition totale.

En plus des composés de retardement d'inflammation, compris dans le domaine de la présente invention, l'aptitude au retardement d'inflammation d'un polymère peut être encore renforcée par l'utilisation de produits dits "synergiques" ou d'agents de renforcement qui, quand ils sont utilisés avec les composés de formule I, favori-

sent un effet de coopération entre eux et ainsi renforcent l'aptitude au retardement d'inflammation de la composition plastique résultante, par comparaison avec l'aptitude au retardement d'inflammation de l'un ou l'autre composant utilisé séparément. Ces "agents de renforcement" comprennent les oxydes et les halogénures des groupes IVA et VA du tableau de classification périodique des éléments et sont en outre décrits dans l'ouvrage Modern Plastics Encyclopedia cité ci-dessus, ainsi que dans les brevets américains n° 2.993.924, n° 2.996.528, n° 3.205.196 et n° 3.878.165. Sans aucune limitation, les agents de renforcement préférés comprennent Sb_2O_3 , $SbCl_3$, $SbBr_3$, SbI_3 , $SbOCl$, As_2O_3 , As_2O_5 , $ZnBO_4$, $BaB_2O_4 \cdot H_2O$, $2ZnO \cdot 3B_2O_3 \cdot 3,5H_2O$ et l'hydrate d'oxyde stanneux. L'agent de renforcement très préféré est le trioxyde d'antimoine.

Il est aussi compris dans le domaine de protection de la présente invention d'utiliser d'autres matières dans les compositions de la présente invention, lorsqu'on désire obtenir un résultat final particulier. Ces matières comprennent, sans limitation, des produits favorisant l'adhérence des anti-oxydants, des agents antistatiques, des produits antimicrobiens, des colorants, des stabilisants thermiques, des stabilisants à la lumière et des produits de charge. Les matières mentionnées ci-dessus, comprenant les produits de charge, sont très complètement décrites dans l'ouvrage Modern Plastics Encyclopedia, cité ci-dessus.

La quantité des matières décrites ci-dessus employées dans les compositions de la présente invention peut être toute quantité qui n'affectera pas de manière sensiblement nocive les résultats souhaités obtenus à partir des compositions de la présente invention. Ainsi, la quantité utilisée peut être zéro %, basée sur le poids total de la composition, jusqu'au pourcentage pour lequel la composition peut être encore classée comme étant une matière plastique. En général, cette quantité sera d'environ 0 % à environ 75 % et plus spécifiquement d'environ 1 % à environ 50 %.

Les exemples suivants sont donnés à titre d'illustration seulement, sans aucune limitation. Sauf indication contraire expresse, toutes les températures sont exprimées en degrés centigrades, tous les poids sont exprimés en grammes et tous les volumes sont exprimés en millilitres.

EXEMPLE 1

Préparation de nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-bromopropyle):

5 Du trichlorure de phosphore (137 grammes; 1 mole) a été dissous dans 100 ml de chlorure de méthylène et 278 grammes (2 moles) d'un mélange de bromopropanol a été ajouté goutte à goutte pendant une période de 2 heures, avec agitation et refroidissement extérieur, dans de la glace, pour maintenir la température en-dessous de 15°C. Lorsque l'addition a été achevée, le mélange réactionnel a
10 été chauffé jusqu'à 35°C, maintenu à cette température pendant 1 heure et puis refroidi de nouveau jusqu'à 10°C. De l'eau (18 grammes, 1 mole) a été ajoutée goutte à goutte en maintenant la température en-dessous de 15°C. Lorsque l'addition a été achevée, un excès d'acide chlorhydrique a été retiré sous vide et la solution a été alors
15 chauffée pendant 1 heure à 40°C. Le chlorure de méthylène a été évaporé pour fournir 319 grammes d'une huile incolore. L'absorption dans l'infrarouge à 2.460 cm^{-1} a confirmé la structure du phosphite de bis(3-bromopropyle).

A 66 grammes d'une solution aqueuse de formaldéhyde à 37 %
20 (excès de 10 %), on a ajouté 15 grammes d'une solution d'ammoniaque à 29 % avec agitation. Il se produit une légère réaction exothermique. On a laissé la solution sous une agitation pendant une demi-heure, puis 250 grammes du phosphite de bis(3-bromopropyle) indiqué ci-dessus ont été ajoutés goutte à goutte pendant une période d'une heure.
25 Le mélange a été agité à la température ambiante pendant 1 heure de plus, puis chauffé jusqu'à 60°C et maintenu à cette température pendant 8 heures. La couche organique a été séparée et lavée deux fois avec de l'eau. L'huile visqueuse résultante de couleur paille a été séchée à 100°C/1,5 mm Hg pendant 2 heures. Le spectre infrarouge montrait la disparition de l'absorption de POH. Analyse pour
30 $\text{C}_{21}\text{H}_{42}\text{Br}_6\text{NO}_9\text{P}_3$: calculée : brome : 46,8 %, phosphore : 9,08 %; trouvé : brome : 43,25 %; phosphore : 9,32 %.

EXEMPLE 2

Préparation de nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis
35 (2-chloroéthyle) :

Du trichlorure de phosphore (549 grammes, 4 moles) a été placé dans un ballon de 3 litres avec 400 ml de chlorure de méthylène.
38 ne. On a fait barboter de l'oxyde d'éthylène (352 grammes) dans la

solution ci-dessus ayant une température de 40 à 60°C. Ensuite, on a ajouté comme catalyseur 20 gouttes de 2-chloroéthanol. Après addition de l'oxyde d'éthylène, le mélange a été agité pendant une demi-heure et puis refroidi jusqu'à 10°C. De l'eau (72 grammes, 4 moles) a été ajoutée goutte à goutte en maintenant la température en-dessous de 25°C. Le solvant a été retiré sous vide en laissant un liquide clair. Le rendement en phosphite de bis(2-chloroéthyle) était 695 grammes ou 85 %.

Ensuite, 275 grammes d'une solution aqueuse de formaldéhyde à 37 % ont été placés dans un ballon séparé de 3 litres. Dans ce dernier ballon, on a ajouté également goutte à goutte 66,4 grammes (1,13 mole) d'une solution d'ammoniaque à 29 %, tout en maintenant la température en-dessous de 35°C. La solution a été agitée pendant une demi-heure et puis 695 grammes (3,4 moles) du phosphite de bis(2-chloroéthyle) ci-dessus ont été ajoutées goutte à goutte, tout en maintenant la température en-dessous de 35°C. La solution a été alors chauffée jusqu'à 60°C et maintenue à cette température, tout en agitant pendant 5 heures. La matière a été lavée deux fois à l'eau, lavée une fois avec de l'ammoniaque, et puis encore une fois à l'eau. L'eau a été retirée sous vide. La matière a été filtrée avec le produit dit celite et le produit dit celkate. La matière était un liquide visqueux clair. Rendement : 220 grammes. Indice d'acide : 0,8. Pourcentage de chlore : valeur théorique : 31,6 %; valeur trouvée : 32,55 %.

On peut préparer de manière semblable à celle présentée dans les exemples 1 et 2 d'autres composés compris dans le domaine de la présente invention, par exemple le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dibromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dichloropropanol), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-chloropropyle), et le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-bromoéthyle).

EXEMPLE 3

Une mousse rigide a été préparée en utilisant la formulation de base suivante :

	<u>Composant</u>	<u>Parties en poids</u>
35	Polyol (a)	100
	Produit tensio-actif formé de silicone glycol(b)	2
38	Trichlorofluorométhane (c)	35
	Polyisocyanate (d)	135

- (a) Alcanolaminepolyol, poids moléculaire approximativement 3500, indice d'hydroxyle approximativement 530, produit dit Thanol R-350-X, de la société dite Jefferson Chemical Co., Houston, Texas.
- 5 (b) Produit dit Dow Corning 193, de la société dite Dow Corning Corp., Midland, Michigan.
- (c) Produit dit Freon 11B, de la société dite E.I. Du Pont de Nemours & Co., Wilmington, Delaware.
- 10 (d) Isocyanate aromatique polymère, 31,5 % de NCO disponible, produit dit Mondur MRS, Mobay Chemical Co., Pittsburg, Pennsylvanie.

Le polyol, le produit tensio-actif et l'agent de gonflement ou de soufflage fluorocarboné ont été combinés dans une fournée principale (mélange maître) basée sur 1.000 g de polyol pour minimiser la perte d'agent de gonflement.

Le mode opératoire suivant a été utilisé pour préparer la mousse :

1. Le polyisocyanate a été pesé dans une coupelle en papier, tarée, de 310 g (les tolérances étant faites pour la retenue) et la coupelle mise de côté alors que les ingrédients restants étaient pesés et mélangés.
2. Le mélange maître de polyol a été pesé, suivant la quantité convenable pour donner 100 grammes de polyol, dans une coupelle en papier, non traitée, de 0,94 litre.
- 25 3. Les 10 grammes du produit de retardement d'inflammation de l'exemple 1 ont été alors pesés dans la même coupelle de 0,94 litre.
4. Le contenu de la coupelle de 0,94 litre a été mélangé à 1.000 tours par minute pendant 5 secondes.
- 30 5. Le polyisocyanate a été alors ajouté et l'agitation à 1.000 tours par minute a été poursuivie pendant 10 secondes.
6. Le mélange a été déversé dans un bac en papier, non traité, de 2,26 kg et on a laissé le mélange s'élever.

Après que la mousse a été exempte d'aspect collant et sensiblement cuite, elle a été mise de côté pendant au moins 7 jours avant de soumettre cette mousse à un test d'indice d'oxygène, ASTM D-2863-74, et à un test de résistance à la compression, ASTM D-1621-73. Les résultats de ces tests sont indiqués dans le tableau II.

On a utilisé le même mode opératoire pour préparer d'autres mousses rigides à différents niveaux de charge ou contenant un additif différent de retardement d'inflammation. Ces mousses ont été également soumises au même test d'indice d'oxygène et au même test de résistance à la compression que la mousse ci-dessus et les résultats sont également indiqués dans le tableau II.

TABLEAU II

Produit de retardement d'inflammation	Niveau de charge, php (a)	Indice d'oxygène, %	Résistance maxima à la compression, kg/cm ²
Contrôle	0	21	2,06
Exemple 1	10	24,0	2,18
	20	25,5	2,42
	30	27,0	2,47
Exemple 2	30	25,0	

(a) parties pour 100 parties de polyol.

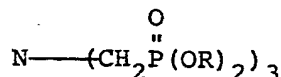
Le tableau II indique clairement que les composés compris dans le domaine de la présente invention, tels qu'indiqués à titre d'exemples par les composés 3 et 6 du tableau I, possèdent un excellent degré d'efficacité de retardement d'inflammation dans des compositions polymères en polyuréthane et, en outre, ne dégradent pas et en fait aident à améliorer les propriétés physiques de ces compositions polymères. D'autres composés de retardement d'inflammation compris dans le domaine de la présente invention, qui présentent également une excellente efficacité de retardement d'inflammation dans des compositions polymères en polyuréthane comprennent le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dibromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dichloropropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-chloropropyle) et le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-bromoéthyle).

L'appréciation de certaines des valeurs de mesures indiquées ci-dessus doit tenir compte du fait qu'elles proviennent de la conversion d'unités anglo-saxonnes en unités métriques.

La présente invention n'est pas limitée aux exemples de réalisation qui viennent d'être décrits, elle est au contraire susceptible de variantes et de modifications qui apparaîtront à l'homme de l'art.

REVENDEICATIONS

1 - Composé, caractérisé en ce qu'il a la formule :



5 où chaque R est indépendamment choisi dans le groupe comprenant des radicaux alkyles halogénés ayant environ 2 à environ 6 atomes de carbone et 1 à environ 4 substituants halogénés.

2 - Composé selon la revendication 1, caractérisé en ce que les substituants halogénés sont choisis dans le groupe comprenant le chlore et le brome.

3 - Composé selon la revendication 2, caractérisé en ce que chacun des radicaux alkyles halogénés contient environ 2 à environ 4 atomes de carbone.

4 - Composé selon la revendication 2, caractérisé en ce que tous les groupes R sont identiques.

5 - Composé selon la revendication 1, caractérisé en ce qu'il est choisi dans le groupe comprenant le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dibromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dichloropropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-bromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-chloropropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-bromoéthyle) et le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-chloroéthyle).

6 - Composition polymère de polyuréthane, caractérisée en ce qu'elle comprend un polymère de polyuréthane et une quantité retardatrice d'inflammation d'un composé selon la revendication 1.

7 - Composition selon la revendication 6, caractérisée en ce que les substituants halogénés sont choisis dans le groupe comprenant le chlore et le brome.

8 - Composition selon la revendication 7, caractérisée en ce que chacun des radicaux alkyles halogénés contient environ 2 à environ 4 atomes de carbone.

9 - Composition selon la revendication 7, caractérisée en ce que tous les groupes R sont identiques.

10 - Composition selon la revendication 6, caractérisée en ce que le composé est le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dibromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2,3-dichloropropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de

bis(3-bromopropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(3-chloropropyle), le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-bromoéthyle) et le nitrilo(triméthylène phosphonate) de bis(2-chloroéthyle).

